

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-179919
(P2002-179919A)

(43) 公開日 平成14年6月26日 (2002.6.26)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	チーコード* (参考)
C 0 8 L 83/04		C 0 8 L 83/04	4 C 0 8 3
A 6 1 K 7/00		A 6 1 K 7/00	J 4 J 0 0 2
			R 4 J 0 3 6
C 0 8 G 77/38		C 0 8 G 77/38	
C 0 8 K 5/54		C 0 8 K 5/54	

審査請求 未請求 請求項の数18 OL 外国語出願 (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願2001-286714(P2001-286714)

(22) 出願日 平成13年9月20日 (2001.9.20)

(31) 優先権主張番号 7 3 0 9 1 3

(32) 優先日 平成12年12月6日 (2000.12.6)

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 592123028

クラリアント・ライフ・サイエンス・モレ
キユールズ (フロリダ) ・インコーポレイ
テッドアメリカ合衆国、フロリダ・32609、ゲイ
ンズビル、ノース・イースト・ファイフティ
フオース・アベニュー・4404

(72) 発明者 ギャリー・イー・レグロー

アメリカ合衆国、フロリダ・32669、ニュー
ーベリイ、サウス・ウエスト・フアース
ト・レイン・13707

(74) 代理人 100062007

弁理士 川口 義雄 (外5名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリコーンゲルを含有する化粧用組成物

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】皮膚に迅速かつ容易に展延し、塗布期間中は望ましい艶消しの外観を有する新規なシリコーンゲルを提供する。形成されたシリコーンゲルは、むらがなく滑りがよく粘つきがなく光り難い。

【解決手段】少なくとも1つの低分子量揮発性オルガノシリコーンとマトリックスとして含まれる少なくとも1つのエラストマー状シリコーン組成物とから成る改良された新規なシリコーンゲル組成物である。このエラストマー状シリコーンは、(1) ビニル末端ポリジメチルシロキサン、(2) 水素化末端ポリジメチルシロキサン、(3) ビニル官能性オルガノシリコーン樹脂、(4) 水素化末端シリコーン系化合物を白金系触媒で架橋する事により得られる。

(2) 002-179919 (P2002-179919A)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：



〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子をもつ一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは Me_3SiO- である〕で示されるアルキルメチルシロキサン及びそれらの組合せから成るグループから選択された低分子量揮発性オルガノシリコン流体と、

(b) (1) 一般式 $ViMe_2SiO(Me_2SiO)_aSiMe_2Vi$ を有するビニル末端をもつポリジメチルシロキサン、(2) 一般式 $HMe_2Si(Me_2SiO)_bSiMe_2H$ を有する水素化末端をもつポリジメチルシロキサン、(3) 一般式 $(ViMe_2SiO)_{1/2}((Me_3SiO)_{1/2})_a(SiO_2)_c$ を有するビニル官能性 $M^V:MQ$ オルガノシリコン樹脂、及び、(4) 一般式 $HMe_2SiO(HMe_2SiORSiO)_fSiMe_2H$ を有する水素化官能性架橋剤、〔式中、Meはメチルであり、Viはビニルであり、Mは $Me_3SiO_{1/2}$ であり、 M^V は $ViMe_2SiO_{1/2}$ であり、Qは SiO_2 であり、Rの各々は独立に、2-8個の炭素を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、aは1-約200の範囲であり、bは1-約200の範囲であり、c及びdは3-約10の範囲であり、eは約10-約20の範囲であり、fは1-3の範囲である〕から成る組成を有する4つの官能性オリゴマーシリコンを白金を触媒としたヒドロシリル化で硬化させることによって製造したエラストマー状シリコンマトリックスと、から成るシリコンゲル組成物。

【請求項2】 前記シリコンマトリックスが5-約25重量%の範囲であり、前記揮発性オルガノシリコン流体が75-約95重量%の範囲であることを特徴とする請求項1に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項3】 前記シリコンマトリックスが10-約20重量%の範囲であり、前記揮発性オルガノシリコン流体が80-約90重量%の範囲であることを特徴とする請求項1に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項4】 前記揮発性オルガノシリコン流体が、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、3-ヘキシルヘプタメチルトリシロキサン、3-オクチルヘプタメチルトリシロキサンまたはn-オクチルトリス(トリメチルシロキシ)シランであることを特徴とする請求項1から3のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項5】 前記シリコンマトリックスが、(1) 約30-約45重量%の前記ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンと、(2) 約25-約40重量%の前記

水素化末端をもつポリジメチルシロキサンと、(3) 約20-約35重量%の前記ビニル官能性 $M^V:MQ$ 樹脂と、(4) 約1-約10重量%の前記水素化官能性架橋剤と、から製造されることを特徴とする請求項1から4のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項6】 前記シリコンマトリックスが、(1) 約35-約40重量%の前記ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンと、(2) 約30-約35重量%の前記水素化末端をもつポリジメチルシロキサンと、(3) 約25-約30重量%の前記ビニル官能性 $M^V:MQ$ 樹脂と、(4) 約2.5-約5.0重量%の前記水素化官能性架橋剤と、から製造されることを特徴とする請求項1から4のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項7】 Rがフェニル置換基であり、aが25-約75の範囲であり、bが5-約20の範囲であり、c及びdが3-約5の範囲であり、eが10-約15の範囲であり、fが1-3の範囲であることを特徴とする請求項1から6のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項8】 前記シリコンマトリックスが、(1) 37.5重量%の前記ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンと、(2) 32.5重量%の前記水素化末端をもつポリジメチルシロキサンと、(3) 27.5重量%の前記ビニル官能性 $M^V:MQ$ 樹脂と、(4) 2.5重量%の前記水素化官能性架橋剤と、から製造され、Rがフェニル置換基であり、aが35-約65の範囲であり、bが5-約15の範囲であり、c及びdが3-約5の範囲であり、eが10-約15の範囲であり、fが1-3の範囲であることを特徴とする請求項1から7のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項9】 成分(1)と成分(3)との全ケイ素-ビニル当量を成分(2)と成分(4)との全ケイ素-水素化物当量によって除算した重量比が $1.05+/-0.05$ であることを特徴とする請求項1から8のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項10】 成分(1)と(3)との全ケイ素-ビニル当量を成分(2)と(4)との全ケイ素-水素化物当量によって除算した重量比が $1.02+/-0.02$ であることを特徴とする請求項1から8のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項11】 前記白金ヒドロシリル化触媒がクロロ白金酸、Karstedt触媒及びAshby触媒から成るグループから選択されることを特徴とする請求項1から10のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項12】 前記白金ヒドロシリル化触媒が、官能性成分の存在量を基準として10ppm-約50ppmの濃度で存在することを特徴とする請求項1から11のいずれか一項に記載のシリコンゲル組成物。

【請求項13】 ヒトの皮膚に塗布したときに、速やか

!(3) 002-179919 (P2002-179919A).

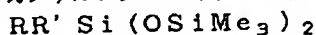
に展延し、光り難い艶消しの仕上がりになることを特徴とする請求項1から12のいずれか一項に記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項14】 ヒトの皮膚に塗布したとき、塗布の15-20分後には、処理された皮膚に、むらがなく滑りがよく粘つきがなく光り難い艶消しの親水性シリコーン被膜が形成されることを特徴とする請求項1から13のいずれか一項に記載のシリコーンゲル組成物。

【請求項15】 (a) 10-約50ppmのKarstedt白金触媒を用い、(1)一般式 $\text{ViMe}_2\text{SiO}_2(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{Vi}$ を有するビニル末端をもつポリジメチルシロキサン、(2)一般式 $\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する水素化末端をもつポリジメチルシロキサン、(3)一般式 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_2)_e$ を有するビニル官能性 MV^1 MQ樹脂、及び、(4)一般式 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_f\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する水素化官能性架橋剤、〔式中、Meはメチルであり、Viはビニルであり、Mは $\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2}$ であり、 MV^1 は $\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$ であり、Qは SiO_2 であり、Rは一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、aは1-約200の範囲であり、bは1-約200の範囲であり、c及びdは3-約10の範囲であり、eは約10-約20の範囲であり、fは1-3の範囲である〕から成る組成を有する10-20部の4つの官能性オリゴマーシリコーンを、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：

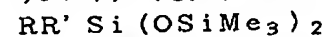


〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは $\text{Me}_3\text{SiO}-$ である〕を有するアルキルメチルシロキサンまたはそれらの任意の組合せから成るグループから選択された80-90重量部の低分子量揮発性オルガノシリコーン流体の存在下で、ヒドロシリル化によって硬化させる段階と、(b)製造されたゲルを、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：

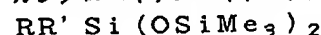


〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは $\text{Me}_3\text{SiO}-$ である〕を有するアルキルメチルシロキサンまたはそれらの任意の組合せから成るグループから選択された100部以下の追加量の同じまたは異なる低分子量揮発性オルガノシリコーン流体の存在下で剪断する段階と、から成るシリコーンゲル組成物の製造方法。

【請求項16】 (a) 10ppmのKarstedt白金触媒を用い、(1)一般式 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{Vi}$ を有する37.5重量%のビニル末端をもつポリジメチルシロキサン、(2)一般式 $\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する32.5重量%の水素化末端をもつポリジメチルシロキサン、(3)一般式 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_2)_e$ を有する27.5重量%のビニル官能性 MV^1 MQ樹脂、及び、(4)一般式 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_f\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する2.5重量%の水素化官能性架橋剤、〔式中、Meはメチルであり、Viはビニルであり、Mは $\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2}$ であり、 MV^1 は $\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$ であり、Qは SiO_2 であり、Rは一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、aは35-約65の範囲であり、bは5-約15の範囲であり、c及びdは3-約5の範囲であり、eは約10-約15の範囲であり、fは1-3の範囲である〕から成る組成を有する20部の4つの官能オリゴマーシリコーンを、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：



〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは $\text{Me}_3\text{SiO}-$ である〕を有するアルキルメチルシロキサンまたはそれらの任意の組合せから成るグループから選択された80重量部の低分子量揮発性オルガノシリコーン流体の存在下で、ヒドロシリル化によって硬化させる段階と、(b)製造されたゲルを、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：



〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは $\text{Me}_3\text{SiO}-$ である〕を有するアルキルメチルシロキサンまたはそれらの任意の組合せから成るグループから選択された100部の追加量の同じまたは異なる低分子量揮発性オルガノシリコーン流体の存在下で剪断する段階と、から成るシリコーンゲル組成物の製造方法。

【請求項17】 請求項1から14のいずれか一項に記載のシリコーンゲル組成物を含む化粧品。

【請求項18】 請求項15または16のに記載の方法で製造されたシリコーンゲル組成物を含む化粧品。

【発明の詳細な説明】

【0001】(発明の分野) 本発明は、少なくとも1種類の揮発性オルガノシリコーン流体をエラストマー状シリコーンマトリックスと共に含むシリコーンゲルに関する。これらの組成物は皮膚に塗り伸ばげると直ちに乾燥し、粘つきのない絹のような感触を与える。揮発性オルガノシリコーン流体の蒸発後、シリコーンの典型的な官能特性をもつ透明な親水性の分離し難いオルガノシリコ

(4) 002-179919 (P2002-179919A)

ーン薄膜が皮膚に残存する。これらの化粧用組成物は塗布後にもまたは塗布後のいかなる時点でも、化粧用組成物の使用に伴ってまたは使用の結果として油性または脂性の光り易いという特性が生じることはない。

【0002】(発明の背景)揮発性の低粘度オルガノシリコン流体が化粧品に種々の望ましい官能特性を与えることは当業界で公知である。また、このようなオルガノシリコン流体が極めて強力な展延性を有することも当業界で公知である。従って、このような揮発性オルガノシリコン流体を含有する化粧品は、塗布部位及び塗布区域の外部の皮膚に容易にかつ迅速に展延する傾向を有している。そのため、揮発性低粘度シリコン流体を改善された物理的状態で含有する化粧品は、身体、特に皮膚に塗布したとき、塗布された場所に持続的に留まることができ、しかも望ましい官能特性を維持することができるので、このような化粧品が極めて重要な事実上の化粧品開発の目的となっている。更に、揮発性シリコン流体が以後に揮発するか及び/または皮膚に吸収された後、目に見えない親水性の連続的なオルガノシリコン薄膜が形成されるのが極めて望ましい。このような特性を有している組成物は、これらの組成物を含有する化粧品に予想以上の顕著な利点を与える。

【0003】シリコンゲルの不揮発性エラストマー状シリコン成分を製造するための種々の方法が記載されている。これらの方法は例えば以下のような従来技術に記載されている：

(a) 米国特許第5,266,321号に記載されているような、ジメチル水素ポリシロキサン加水分解及び縮合、(b) 米国特許第4,987,169号及び第6,027,738号に記載されているような、ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンをジメチル水素ポリシロキサンでヒドロシリル化することによって行う付加重合、(c) 米国特許第5,880,210号に記載されているような、アルファ-オレフィンとアルファ、オメガ-ジエンとの混合物をSi-H含有ポリジメチルシロキサンでヒドロシリル化することによって行う付加重合、(d) 米国特許第5,760,116号に記載されているような、ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンをヒドロジメチルシロキサン及びヒドロジメチルシロキシシリケートでヒドロシリル化することによって行う付加重合、(e) 米国特許第5,929,163号に記載されているような、ポリオキシアルキレンオルガノポリシロキサン。

【0004】上記の参考文献ではいずれも、官能性オリゴマーシロキサンが結合して無限分子量の単一分子(マトリックス)を形成し、生成物中に抽出可能な未反応オリゴマーシロキサンが残らないような化学結合反応を生じさせる。しかしながら実際には、幾つかのよく知られた理由で必ずしも全部の官能性オリゴマーシロキサンがマトリックスに化学結合しない。特定の理論に固執する

意図はないが、これには以下のような理由が考えられる。

(a) 反応体のSi-H対Si-ViまたはSi-アシルが化学量論的に不均衡なので、通常はSi-ViまたはSi-アシルを含有する未結合分子が残る、及び、

(b) 分子の立体障害が存在するので未反応官能基が残る。

【0005】その結果として、未結合の不揮発性オリゴマーシロキサンが抽出可能な量で残るので、シリコン油が一般的に示す光った外見が生じるであろう。

【0006】(発明の概要)本発明は、低分子量揮発性オルガノシリコン流体とエラストマー状シリコン多成分増粘剤とを構成成分として含む新規な無色透明の化粧用ゲル組成物に関する。本発明によれば、低分子量揮発性オルガノシリコン流体は、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、及び、一般式：



(式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子をもつ一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは Me_3SiO 基である)を有するアルキルメチルシロキサンから選択され得る。

【0007】エラストマー状シリコン増粘剤は、

(1)一般式 $ViMe_2SiO(Me_2SiO)_aSiMe_2Vi$ を有するビニル末端をもつポリジメチルシロキサン、(2)一般式 $HMe_2Si(Me_2SiO)_bSiMe_2H$ を有する水素化末端をもつポリジメチルシロキサン、(3)一般式 $(ViMe_2SiO_{1/2})_c((Me_3SiO_{1/2})_d(SiO_2)_e)$ を有するビニル官能性 $MV:MQ$ オルガノシリコン樹脂、及び、(4)一般式 $HMe_2SiO(HMe_2SiORSiO)_fSiMe_2H$ を有する水素化官能性オルガノシリコン架橋剤、[式中、Meはメチルであり、Viはビニルであり、Mは $Me_3SiO_{1/2}$ であり、 $MV:$ は $ViMe_2SiO_{1/2}$ であり、Qは SiO_2 であり、Rは、2-8個の炭素を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、aは1-約200の範囲であり、bは1-約200の範囲であり、c及びdは3-約10の範囲であり、eは約10-約20の範囲であり、fは1-3の範囲である]から成る4つの異なる官能性オリゴマーシリコンを溶解させることによって製造されたシリコンマトリックスである。

【0008】本発明は更に、本発明のゲル組成物の製造方法及び化粧品におけるそれらの使用に関する。

【0009】(図面の簡単な説明)図1は、ベトロラタムとD5中のシリコンゲル及び41M10中のシリコンゲルとの比較を段階法によって表すグラフである。

【0010】公知生成物であるベトロラタムと公知の担体(D5及び41M10)中の本発明の2つの生成物とについて、種々のいわゆる官能特性を比較している。

(5) 002-179919 (P2002-179919A)

【0011】(詳細な説明)改良された化粧用ゲル組成物は、(a)少なくとも1種類の低分子量揮発性オルガノシリコン流体から成る第一成分と、(b)少なくとも1種類のエラストマー状シリコンを基材とする増粘剤から成る第二成分との組合せによって得られた生成物である。

【0012】第一成分(a)は、多くの公知シロキサン(1つでよい1種または複数の低分子量揮発性オルガノシリコン流体から成り得る。これらの化合物としては、デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)、及び、一般式:



〔式中、Meはメチルであり、Rは2-8個の炭素原子をもつ一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、R'はメチルまたは Me_3SiO -基である〕で示される幾つかのアルキルメチルシロキサン及びそれらの混合物がある。

【0013】このような化合物は市販化合物でもよくまたは公知方法で製造されてよい。

【0014】第二の必要成分(b)として選択されるエラストマー状シリコン増粘剤は、所望の化粧用組成物が得られるように異なる構造の4つの官能性オリゴマーシリコンをヒドロシリル化することによって製造されるシリコンマトリックスである。

【0015】増粘剤を形成するためにヒドロシリル化される構造的に異なる4つのオリゴマーシリコンとして使用される成分は、(1)一般式 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_a\text{SiMe}_2\text{Vi}$ を有するビニル末端をもつポリジメチルシロキサン、(2)一般式 $\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する水素化末端をもつポリジメチルシロキサン、(3)一般式 $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c((\text{Me}_2\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_2)_e)$ を有するビニル官能性 MV^1MQ オルガノシリコン樹脂、及び、(4)一般式 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_f\text{SiMe}_2\text{H}$ を有する水素化官能性架橋剤、〔式中、Meはメチルであり、Viはビニルであり、Mは $\text{Me}_2\text{SiO}_{1/2}$ であり、 MV^1 は $\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$ であり、Qは SiO_2 であり、Rの各々は独立に、2-8個の炭素を有する一価の脂肪族または芳香族炭化水素置換基であり、aは1-約200、好ましくは約25-約75、より好ましくは約35-約65の範囲でよく、bは1-約200、好ましくは約50-約200、より好ましくは約5-約15の範囲でよく、c及びdは3-約10、好ましくは約3-約5の範囲でよく、eは約10-約20、好ましくは約10-約15の範囲でよく、及び、fは1-3の範囲でよい〕から成る。

【0016】これらの4つの成分の各々は当業者に公知であり、市販物質でもよくまたは当業界で公知の方法で

製造してもよい。

【0017】本発明の好ましい実施態様においては、4つの官能性オリゴマーシリコンの量を以下の範囲内で調整し得る:

(1) ビニル末端をもつポリジメチルシロキサンは、約35-約45重量%の範囲の量、好ましくは37.5重量%の量で使用され得る。

(2) 水素化末端をもつポリジメチルシロキサンは、約25-約40重量%、好ましくは約30-約35重量%の範囲の量、最も好ましくは32.5重量%の量で使用され得る。

(3) ビニル官能性 MV^1MQ オルガノシリコン樹脂は、約20-約35重量%の範囲の量、好ましくは27.5重量%の量で使用され得る。

(4) 水素化官能性架橋剤は約1-約10重量%、より好ましくは約2.5-約5.0重量%の範囲の量で存在し得る。

【0018】使用される4つの官能性オリゴマーシリコンの全 Si-Vi 当量対全 Si-H 当量の比は、 $1.05+/-0.05$ 、好ましくは $1.02+/-0.02$ に維持されなければならない。樹脂及び架橋剤は、ゲルがその後の用途に使用中に最適な官能特性を維持するように、また、最終製品の塗布後に形成される薄膜が最適な特性となるように調整しなければならない。上記に記載の官能性成分の分子構造は、2つ以上の官能部位をもつ分子中で末端位置にのみ官能基 Si-H 及び Si-Vi が存在する、即ち、 $-\text{SiMe}_2\text{H}$ 及び $-\text{SiMe}_2\text{Vi}$ の形態の官能基だけが存在するような構造である。この種類の官能基は一般的に、ヒドロシリル化反応を行うときに立体障害という問題を全く生じない。その結果として、上記に定義の種類のこれらの4成分から製造されたマトリックスは一般に、 $-\text{SiMe}_2\text{H}$ 及び $-\text{SiMe}_2\text{Vi}$ の双方を合わせた未反応官能基を最小量で含有し、最終製品中に含まれる未反応の抽出可能成分も最小量になっている。残留官能基及び抽出可能成分が存在しない結果として、これらのエラストマー状マトリックスは皮膚に塗布したときに光り難い。更に、得られたゲル系中のシリコン担体が蒸発または吸収されるので、マトリックスを組込んだ組成物の塗布後には、エラストマー状シリコンの殆ど目に見えない親水性の薄膜が形成される。

【0019】ヒドロシリル化反応は当業者に公知の慣用のヒドロシリル化条件、例えば、約85℃未満のオーダの温度、好ましくは約25℃-約80℃の温度、及び、官能性成分の存在量に基づいて約2-約200ppm、好ましくは約10ppm-約50ppmの公知の任意のヒドロシリル化触媒の存在下で行う。代表的な触媒は、クロロ白金酸または特にLamoreauxの米国特許第3,220,972号;Karstedtの米国特許第3,715,334号、第3,775,452号及び

(6) 002-179919 (P2002-179919A)

第3, 814, 730号; Ashbyの米国特許第4, 421, 903号及び第4, 288, 345号に記載の触媒のような白金を基材とするヒドロシリル化触媒である。特に好ましい触媒は、Karstedt触媒及びAshby触媒という通称で呼ばれる触媒である。勿論、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、オスミウム及びイリジウムなどの貴金属触媒並びにこれらの金属の錯体を含む触媒のような当業者に公知の別の適当なヒドロシリル化触媒の使用も本発明の範囲に包含される。

【0020】本発明のシリコーンゲルの製造方法は、低分子量揮発性オルガノシリコン流体の存在下で4つの官能性オリゴマーシリコーンをヒドロシリル化触媒でヒドロシリル化することによって進行する。好ましくはヒドロシリル化反応体と揮発性流体とを合わせた重量を基準として、ヒドロシリル化反応体の全量は約10—約20重量部の範囲であり、揮発性流体の全量は約80—約90重量部の範囲である。好ましくは、このようにして形成された組成物を次に、約100重量部以下の同じまたは異なる揮発性オルガノシリコン流体の存在下で剪断処理して本発明のゲルを形成する。

【0021】本発明の組成物は、化粧品業界の関連用途で公知及び/または常用の組成物に卓越した多くの利点を有している。ゲルはまた当業者に公知の別の化粧品成分、例えば、不揮発性シリコーン—脂肪族炭化水素ハイブリッド流体並びに長鎖脂肪族炭化水素及びエステルのような有機材料を添加することによって化粧品形態に製品化され得る。ステアロキシトリメチルシランのような有効成分をこれらの混合物に容易に配合し得る。また、別の化粧品用添加剤、例えば、香料、黴防止剤、発汗防止剤、保湿剤、虫忌避剤、芳香剤、脱臭剤、皮膚緩和剤、防腐剤、日焼け防止剤、洗浄剤、適当な医薬、顔料、殺生剤及びこれらの成分の任意の混合物を添加し得る。

【0022】実施例

以下の実施例は本発明の単なる代表例である。しかしながらいかなる点においても実施例が本発明の範囲または特許請求の範囲を限定すると解釈してはならないことを理解されたい。

【0023】実施例1.

75g (0.019モル)の直鎖状 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{5.1}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、65g (0.074モル)の直鎖状 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$ 、55g (0.039モル)の $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ 樹脂中の10ppmのKarstedt白金触媒を、架橋剤である5.0g (0.0152モル)の $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ と、室温で、800gのデカメチルシクロペンタシロキサン中で反応させることによってシリコーンゲルを製造した。24時間後、硬質ゲルが形成された。500gのこのゲルを次に、追加量の500gのデカメチルシクロペンタシロキサンと共

にWaringブレンダーに配置した。この混合物を最大RPMで約10分間ブレンドすることによって剪断した。得られた液体をガラスジャーに移し、締めねじ蓋で上部を閉鎖した。この状態で室温で約20時間維持した後、得られたゲルは半透明でありベトロラタムと同様の粘度を有していた。

【0024】実施例2.

75g (0.019モル)の直鎖状 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{5.1}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、65g (0.074モル)の直鎖状 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_3\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$ 、55g (0.039モル)の $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ 樹脂中の10ppmのKarstedt白金触媒を、架橋剤である5.0g (0.0152モル)の $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ と、室温で、800gの3-n-ヘキシルヘプタメチルトリシロキサン($\text{SilCare}^{\text{TM}}$ 41M10ヘキシルメチコン)中で使用してシリコーンゲルを製造した。24時間後、硬質ゲルが形成された。500gのこのゲルを次に、追加量の500gの3-n-ヘキシルヘプタメチルトリシロキサンと共にWaringブレンダーに配置した。この混合物を最大RPMで約10分間ブレンドすることによって剪断した。得られた液体をガラスジャーに移し、締めねじ蓋で上部を閉鎖した。この状態で室温で約20時間維持した後、得られたゲルは透明でありベトロラタムと同様の粘度を有していた。

【0025】実施例3.

75g (0.019モル)の直鎖状 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{5.1}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 、65g (0.074モル)の直鎖状 $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$ 、55g (0.039モル)の $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ 樹脂中の10ppmのKarstedt白金触媒を、架橋剤である5.0g (0.0152モル)の $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ と、室温で、800gのn-オクタトリリス(トリメチルシロキシ)シラン($\text{SilCare}^{\text{TM}}$ 31M60カプリルトリメチコン)中で使用してシリコーンゲルを製造した。24時間後、硬質ゲルが形成された。500gのこのゲルを次に、追加量の500gのn-オクタトリリス(トリメチルシロキシ)シランと共にWaringブレンダーに配置した。この混合物の赤外分析では、Si-Hが観察される 2100cm^{-1} に吸収が全く存在しないことが確認された。この混合物を最大RPMで約10分間ブレンドすることによって剪断した。得られた液体をガラスジャーに移し、締めねじ蓋で上部を閉鎖した。この状態で室温で約20時間維持した後、得られたゲルは透明でありベトロラタムと同様の粘度を有していた。

【0026】実施例4.

"Sensory Evaluation of Ma

:(7) 002-179919 (P2002-179919A)

terials and Products (材料及び製品の官能評価)" という題名の ASTM 法 E1490-92 のプロトコルに従って、10 人の有志の熟練パネリストから成る官能パネルが、上記の実施例 1 及び 2 によって製造されたゲル並びにペトラタムの官能プロフィールを鑑定した。官能パネルによって得られた各官能パラメーターの平均値を本文中で詳細に前述した図 1 に示す。特に注目すべきは、皮膚に付着するゲル薄膜の残留性 (residue) 及び蠟質性 (waxiness) が、3-n-ヘキシルヘプタメチルトリシロキサン (SilCare™ 41M10 ヘキシルメチコン) を担体として使用したときにデカメチルシクロペンタシロキサン (D5) を担体として使用したときに比べて低いことである。ペトラタムとこれらのシリコンゲルとの間では種々の官能特性の顕著な違いが存在する。これらの違いは公知の従来技術から多少は予測されていた。しかしながら特に注目すべき重要な違いは、これらのシリコンゲルがペトラタムに比べて有意に光り難いこと、並びに、展延性及び平滑性に関する評価が高いことである。

【0027】比較実施例 1.

11.0 g (0.00165 モル) の直鎖状 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{88}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 及び 22 g (0.0156 モル) の $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ 樹脂中の 10 ppm の Karstedt 白金触媒を、架橋剤である 7.0 g (0.0212 モル) の $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ と、室温で、360 g のデカメチルシクロペンタシロキサン中で使用してシリコンゲルを製造した。24 時間後、軟質ゲルが形成された。このゲルを皮膚に塗布すると、形成された薄膜は粘つきを示した。

【0028】比較実施例 2.

16.5 g (0.0025 モル) の直鎖状 $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{88}\text{SiMe}_2\text{Vi}$ 及び 16.5 g (0.0117 モル) の $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ 樹脂中の 10 ppm の Karstedt 白金触媒を、架橋剤である 7.0 g (0.0152 モル) の $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ と、室温で、360 g の 3-n-ヘキシルヘプタメチルトリシロキサン (SilCare™ 41M10 ヘキシルメチコン) 中で使用することによってシリコンゲルを製造した。24 時間後、軟質ゲルが形成された。このゲルを皮膚に展延させると、形成された薄膜は光り易く油性であった。

【0029】注: 上記の 2 つの比較実施例では $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_x\text{SiMe}_2\text{H}$ を使用せず、化学量論的量を $\text{Vi}/\text{H}=1.0$ に維持した。

【0030】上記の詳細な記載から本発明の多くの変更が平均的な当業者には自明であろう。例えば、揮発性シリコン、揮発性アルキルシリコンハイブリッド材料または両者の任意の組合せの混合物からゲルを製造してもよい。また、ゲルが揮発性または不揮発性の有機物でもよい。このような明白な変更のすべてが特許請求の範囲に全面的に定義された本発明の範囲に包含されるであろう。

【0031】上記に引用した特許及び試験方法はその記載内容全部が参照によって本発明に含まれるものとする。

【図面の簡単な説明】

【図 1】ペトラタムと D5 中のシリコンゲル及び 41M10 中のシリコンゲルとの比較を段階法によって表すグラフである。

(8) 002-179919 (P2002-179919A)

【図1】

FIGURE 1

ペトロラタム対D5中及び41M10中のシリコンゲルの官能特性の比較



フロントページの続き

(72)発明者 レオナード・ダブリュ・テリー
 アメリカ合衆国、フロリダ・32653、ゲイ
 ンズビル、ノース・ウエスト・セブンティ
 セカンド・ストリート・5922

Fターム(参考) 4C083 AD151 AD161 AD171 DD41
 4J002 CP031 EX006 EX037 FD206
 FD207 GB00
 4J035 BA01 CA02U CA13U FB05
 FB10 GA01 GB03 GB08 GB09
 GB10

!(9) 002-179919 (P2002-179919A)

【外国語明細書】

1. Title of Invention

COSMETIC COMPOSITIONS CONTAINING SILICONE GEL

2. Claims

1. A silicone gel composition comprising:

- (a) a low molecular weight volatile organosilicone fluid selected from the group consisting of decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane and alkylmethyilsiloxanes having the general formula



wherein

Me is methyl, and

R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent with from 2 to 8 carbon atoms,

R' is methyl or Me_3SiO- , and combinations thereof,

and

- (b) an elastomeric-like silicone matrix produced by platinum catalyzed hydrosilylation curing of four functional oligomeric silicones, having the following compositions:
- (1) a vinyl terminated polydimethylsiloxane having the general formula $ViMe_2SiO(Me_2SiO)_nSiMe_2Vi$,
 - (2) a hydride terminated polydimethylsiloxane having the general formula $HMe_2Si(Me_2SiO)_nSiMe_2H$,
 - (3) a vinyl functional MQ organosilicone resin having the general formula $(ViMe_2SiO_{1/2})_x(Me_2SiO_{1/2})_y(SiO_2)_z$ and
 - (4) a hydride functional crosslinking agent having the general formula $HMe_2SiO(HMe_2SiORSiO)_nSiMe_2H$,

(10) 02-179919 (P2002-179919A)

wherein

Me is methyl,

Vi is vinyl,

M is $\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2}$, M^* is $\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$,Q is SiO_2 ,

each R is independently a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent having 2 to 8 carbons,

a is in the range of 1 to about 200,

b is in the range of 1 to about 200,

c and d are in the range of 3 to about 10,

e is in the range of about 10 to about 20, and

f is in the range of 1 to 3.

2. A silicone gel composition according to claim 1, wherein said silicone matrix is in the range of 5 to about 25 weight percent and said volatile organosilicone fluid is in the range of 75 to about 95 weight percent.
3. A silicone gel composition according to claim 1, wherein said silicone matrix is in the range of 10 to about 20 weight percent and said volatile organosilicone fluid is in the range of 80 to about 90 weight percent.
4. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 3, wherein said volatile organosilicone fluid is decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane, 3-hexylheptamethyltrisiloxane, 3-octylheptamethyltrisiloxane or n-octyltris (trimethylsiloxy)silane.
5. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 4, wherein said silicone matrix is produced from
 - (1) about 30 to about 45 weight percent of said vinyl terminated polydimethylsiloxane,
 - (2) about 25 to about 40 weight percent of said hydride terminated polydimethylsiloxane,

(11) 02-179919 (P2002-179919A)

- (3) about 20 to about 35 weight percent of said vinyl functional M^wMQ resin,
and
 - (4) about 1 to about 10 weight percent of said hydride functional crosslinking reagent.
6. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 4, wherein said silicone matrix is produced from
- (1) about 35 to about 40 weight percent of said vinyl terminated polydimethylsiloxane,
 - (2) about 30 to about 35 weight percent of said hydride terminated polydimethylsiloxane,
 - (3) about 25 to about 30 weight percent of said vinyl functional M^wMQ resin,
and
 - (4) about 2.5 to about 5.0 weight percent of said hydride functional crosslinking reagent.
7. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 6, wherein R is a phenyl substituent, a is in the range of 25 to about 75, b is in the range of 5 to about 20, c and d are in the range of 3 to about 5, e is in the range of 10 to about 15, and f is in the range of 1 to 3.
8. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 7, wherein said silicone matrix is produced from
- (1) 37.5 weight percent of said vinyl terminated polydimethylsiloxane,
 - (2) 32.5 weight percent of said hydride terminated polydimethylsiloxane,
 - (3) 27.5 weight percent of said vinyl functional M^wMQ resin, and
 - (4) 2.5 weight percent of said hydride functional crosslinking reagent, and

(2) 02-179919 (P2002-179919A)

wherein R is a phenyl substituent, a is in the range of 35 to about 65, b is in the range of 5 to about 15, c and d are in the range of 3 to about 5, e is in the range of 10 to about 15, and f is in the range of 1 to 3.

9. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 8, wherein the weight ratio of the total silicon-vinyl equivalency of components (1) plus (3) divided by the total silicon-hydride equivalency of components (2) plus (4) is 1.05 ± 0.05 .
10. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 8, wherein the weight ratio of the total silicon-vinyl equivalency of components (1) plus (3) divided by the total silicon-hydride equivalency of components (2) plus (4) is 1.02 ± 0.02 .
11. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 10, wherein said platinum hydrosilylation catalyst is selected from the group comprising chloroplatinic acid, Karstedt's catalyst and Ashby's catalyst.
12. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 11, wherein said platinum hydrosilylation catalyst is present at a concentration of from 10 parts per million, to about 50 ppm, based on the amount of the functional components present.
13. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 12, which, when applied to human skin spreads readily and results in a dull, non-glossy finish.
14. A silicone gel composition according to any of claims 1 to 13, which, from 15 to 20 minutes after application to the human skin, results in a smooth, slippery, non-tacky, dull, non-glossy, water repellent silicone coating on the skin so treated.
15. A method of producing a silicone gel composition by
 - (a) hydrosilylation curing, with 10 to about 50 ppm of Karstedt's platinum catalyst of 10 to 20 parts of the four functional oligomeric silicones having the following compositions:

(3) 102-179919 (P2002-179919A)

- (1) a vinyl terminated polydimethylsiloxane having the general formula

$$\text{ViMe}_2\text{SiO}_2(\text{Me}_2\text{SiO})_a\text{SiMe}_2\text{Vi},$$
- (2) a hydride terminated polydimethylsiloxane having the general formula

$$\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{H},$$
- (3) a vinyl functional M^wMQ resin, having the general formula

$$(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_2)_e,$$
 and
- (4) a hydride functional crosslinking composition, having the general formula

$$\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_f\text{SiMe}_2\text{H};$$

wherein

- Me is methyl,
 Vi is vinyl,
 M is $\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2}$,
 M^w is $\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2}$,
 Q is SiO_2 ,
 R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent,
 a is in the range of 1 to about 200,
 b is in the range of 1 to about 200,
 c and d are in the range of 3 to about 10,
 e is in the range of 10 to about 20, and
 f is in the range of 1 to 3.

in the presence of 80 to 90 parts by weight of a low molecular weight volatile organosilicone fluid selected from the group comprising decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane, and alkylmethylsiloxanes having the general formula..



wherein

- Me is methyl, and
 R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent having from 2 to 8 carbon atoms.

(註4) 102-179919 (P2002-179919A)

R' is methyl or $\text{Me}_3\text{SiO}-$, or any combination thereof,

and

- (b) shearing the gel produced in the presence of up to about 100 parts of the same or different additional low molecular weight volatile organosilicone fluid selected from the group comprising decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane, and alkylmethylsiloxanes having the general formula



wherein

Me is methyl, and

R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent having from 2 to 8 carbon atoms,

R' is methyl or $\text{Me}_3\text{SiO}-$, or any combination thereof,

16. A method of producing a silicone gel composition by

- (a) hydrosilylation curing, with 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst, of 20 parts of the four functional oligomeric silicones having the following compositions:

- (1) 37.5% by weight of a vinyl terminated polydimethylsiloxane having the general formula $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_n\text{SiMe}_2\text{Vi}$,
- (2) 32.5% by weight of a hydride terminated polydimethylsiloxane having the general formula $\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_n\text{SiMe}_2\text{H}$,
- (3) 27.5% by weight of a vinyl functional M^vMQ resin of the general formula $(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_2)_a$, and
- (4) 2.5% weight of a hydride functional crosslinking agent having the general formula $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_n\text{SiMe}_2\text{H}$,

(5) 102-179919 (P2002-179919A)

wherein

- Me is methyl,
 Vi is vinyl,
 M is $\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2}$,
 Q is SiO_2 ,
 R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent,
 a is in the range of 35 to about 65,
 b is in the range of 5 to about 15,
 c and d are in the range of 3 to about 5,
 e is in the range of 10 to about 15, and
 f is in the range of 1 to 3,

in the presence of 80 parts by weight of a low molecular weight volatile organosilicone fluid selected from the group comprising decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane and alkylmethylsiloxanes having the general formula



wherein

- Me is methyl,
 R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent having from 2 to 8 carbon atoms, and
 R' is methyl or $\text{Me}_3\text{SiO}-$, or any combination thereof,

and

- (b) shearing the gel produced in the presence of 100 parts of the same or different additional low molecular weight volatile organosilicone fluid selected from the group comprising decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane, and alkylmethylsiloxanes having the general formula



(16) 102-179919 (P2002-179919A)

wherein

Me is methyl,

R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent having from 2 to 8 carbon atoms; and

R' is methyl or Me₃SiO-, or any combination thereof.

17. A cosmetic formulation comprising a silicone gel composition as defined in any of claims 1 to 14.
18. A cosmetic formulation comprising a silicone gel composition produced by the process of claim 15 or 16.

(47) 02-179919 (P2002-179919A)

3. Detailed Description of Invention

FIELD OF THE INVENTION

The present invention relates to silicone gels comprising at least one volatile organosilicone fluid with an elastomeric-like silicone matrix. These compositions immediately after being spread on the skin appear to be dry and impart a non-tacky, silky feel. Following evaporation of the volatile organosilicone fluid, a transparent, water-repellent non-extractable organosilicone film, possessing typical silicone sensory characteristics, remains on the skin. No shiny, oily or greasy characteristics are associated with or occur as a result of using these cosmetic compositions either at application or at any time thereafter.

BACKGROUND OF THE INVENTION

It is well known in the art that volatile, low viscosity organosilicone fluids impart various desirable sensory characteristics to cosmetic formulations. It is also well known in the art that such organosilicone fluids possess very strong spreading characteristics. Consequently, cosmetic formulations containing such volatile organosilicone fluids have a tendency to readily and rapidly spread on the skin beyond the location and areas where they are applied. As a result, there is a great interest and practical objective for developing cosmetic formulations containing volatile low viscosity silicone fluids in an improved physical state which, when spread on the body, particularly the skin, stay in place where spread, and continue to do so, and yet retain their desirable sensory properties. In addition, after the volatile silicone fluid has either subsequently volatilized and/or has been absorbed into the skin, formation of an invisible, continuous water repellent organosilicone film is highly desirable. The compositions having such properties provide unexpected and outstanding usefulness for the cosmetic formulations containing them.

Numerous routes to the preparation of the non-volatile elastomeric-like silicone component of silicone gels have been described. These routes as described in the prior art for example, include

- (a) hydrolysis and condensation of dimethylhydrogenpolysiloxanes, as described in U.S. Patent No. 5,266,321.

(48) 102-179919 (P2002-179919A)

- (b) addition polymerization, by hydrosilylation, of vinyl terminated polydimethylsiloxanes by dimethylhydrogenpolysiloxanes, as described in U.S. Patent Nos. 4,987,169 and 6,027,738.
- (c) addition polymerization, by hydrosilylation, of a mixture of alpha-olefins and alpha, omega-dienes by Si-H-containing polydimethylsiloxanes, as described for example, in U.S. Patent No. 5,880,210.
- (d) addition polymerization, by hydrosilylation of vinyl terminated polydimethylsiloxanes by hydrodimehtylsiloxanes and hydrodimehtylsiloxysilicates, as described in U.S. Patent No. 5,760,116 and
- (e) a polyoxyalkylene organopolysiloxane as described, in U.S. Patent No. 5,929,163.

In all of these references, chemical coupling reactions occur in order to combine functional oligomeric siloxanes to form a single molecule of infinite molecular weight (matrix), thus, leaving no unreacted extractable oligomeric siloxanes in the product. In actual practice; however, there are certain and known reasons whereby not all the functional oligomeric siloxanes do, in fact, become chemically combined to the matrix. While not wishing to be bound by any particular theory, it is believed that these reasons can and may include

- (a) stoichiometric reactant imbalances of Si:H to Si-Vi or Si-Allyl, leaving, usually, unattached molecules containing Si-Vi or Si-Allyl and
- (b) steric hindrance of the molecules leaving functional groups unreacted.

As a result, any uncombined, non-volatile oligomeric siloxanes are thereafter extractable and will impart the shiny appearance normally associated with silicone oils.

SUMMARY OF THE INVENTION

The present invention relates to novel, clear and colorless cosmetic gel compositions comprising as ingredients thereof, low molecular weight, volatile organosilicone fluids

(49) 02-179919 (P2002-179919A)

and an elastomeric-like silicone multi-component thickening agent. The low molecular weight volatile organosilicone fluid of the present invention may be chosen from decamethylcyclopentasiloxane, dodecamethylcyclohexasiloxane, and alkylmethylsiloxanes having the general formula



wherein

Me is methyl,

R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent with from 2 to 8 carbons, and

R' is methyl or a Me_3SiO group.

The elastomeric-like silicone thickening agent is a silicone matrix produced by dissolving 4 different functional oligomeric silicones.

- (1) a vinyl terminated polydimethylsiloxane of the general formula $ViMe_2SiO(Me_2SiO)_nSiMe_2Vi$,
- (2) a hydride terminated polydimethylsiloxane of the general formula $HMe_2Si(MeSiO)_nSiMe_2H$,
- (3) a vinyl functional M^vMQ organosilicone resin of the general formula $(ViMe_2SiO_{1/2})_c(Me_3SiO_{1/2})_d(SiO_2)_e$ and
- (4) a hydride functional organosilicone crosslinker of the general formula $HMe_2SiO(HMe_2SiORSiO)_nSiMe_2H$;

wherein

Me is Methyl,

Vi is Vinyl,

M is $Me_3SiO_{1/2}$,

M^v is $ViMe_2SiO_{1/2}$,

Q is SiO_2 ,

R is a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent with from 2 to 8 carbons,

(20) 102-179919 (P2002-179919A)

- a may range from 1 to about 200,
- b may range from 1 to about 200,
- c and d may range from 3 to about 10,
- e may range from about 10 to about 20, and
- f may range from 1 to 3.

The present invention further relates to methods for preparing the gel compositions of the present invention and to their use in cosmetic formulations.

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWING

The drawing FIGURE 1 is a comparison study on a scale basis of petrolatum with silicone gel in D5 and with silicone gel in 41M10.

Various so-called sensory characteristics are compared for the well-known product, petrolatum, and two products of the present invention in known carriers (D5 and 41M10).

DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

The improved cosmetic gel compositions are products obtained from the combinations of a first component (a) at least one low molecular weight volatile organosilicone fluid together with a second component (b) at least one elastomeric-like silicone based thickening agent.

The first component (a) may comprise one or more low molecular weight volatile organosilicone fluids which can be one of a number of known siloxanes. These compounds include decamethylcyclopentasiloxane (D5), dodecamethylcyclohexasiloxane (D6), certain alkylmethylsiloxane, of the formula



wherein

Me is methyl,

R is a monovalent aliphatic or aromatic substituent with from 2 to 8 carbon atoms and

(21) 02-179919 (P2002-179919A)

R' is methyl or a Me₃SiO-group and mixtures thereof.

Such compounds are available commercially or may be prepared by known methods.

The elastomeric-like silicone thickening agent selected as the second necessary component (b) is a silicone matrix which is produced by hydrosilylating four different structured functional oligomeric silicones to produce the desired resulting cosmetic composition products.

The four structurally different oligomeric silicones which are hydrosilylated to form the thickening agent used are as follows:

- 1) a vinyl terminated polydimethylsiloxane having the general formula

$$\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_a\text{SiMe}_2\text{Vi},$$
- 2) a hydride terminated polydimethylsiloxane having the general formula

$$\text{HMe}_2\text{Si}(\text{Me}_2\text{SiO})_b\text{SiMe}_2\text{H},$$
- 3) a vinyl functional MⁿMQ organosilicone resin having the general formula

$$(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_c(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_d(\text{SiO}_{1/2})_e,$$
- 4) a hydride functional organosilicone crosslinking agent having the general formula

$$\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{HMe}_2\text{SiORSiO})_f\text{SiMe}_2\text{H},$$

wherein

Me is methyl,

Vi is vinyl,

M is Me₃SiO_{1/2},

Mⁿ is ViMe₂SiO_{1/2},

Q is SiO₂,

each R is independently a monovalent aliphatic or aromatic hydrocarbon substituent with from 2 to 8 carbons,

a may be 1 to about 200, preferably from about 25 to about 75, more preferably from about 35 to about 65,

b may be 1 to about 200, preferably from about 5 to about 20, more preferably from about 5 to about 15,

(22) 102-179919 (P2002-179919A)

- c and d may be 3 to 10, preferably from about 3 to about 5,
e may be about 10 to 20, preferably from about 10 to about 15, and
f may be 1 to 3.

Each of these four components are known to those skilled in the art, are available commercially or may be produced by methods known in the art.

In preferred embodiments of the present invention, the amounts of the four functional oligomeric silicones may vary as follows:

- (1) the vinyl terminated polydimethylsiloxane may be employed in amounts ranging from about 35 to about 45 weight percent, preferably 37.5 weight percent;
- (2) the hydride terminated polydimethylsiloxane may be employed in amounts ranging from about 25 to about 40 weight percent, preferably from about 30 to about 35 weight percent, most preferably 32.5 weight percent;
- (3) the vinyl functional M^uMQ organosilicone resin may be employed in amounts ranging from about 20 to about 35 weight percent, preferably 27.5 percent; and
- (4) the hydride functional crosslinking request may be present in amounts ranging from about 1 to about 10 weight percent, more preferably from about 2.5 to about 5 weight percent.

The ratio of the total Si-Vi equivalents to Si-H equivalents for the four functional oligomeric silicones used should be maintained at 1.05 +/- 0.05, preferably 1.02 +/- 0.02, and the resin and crosslinking agent should be adjusted to optimize the sensory properties of the gel during its later use application, and also those properties of the film which result after application of the final product. The molecular structures of the functional ingredients described hereinabove have the Si-H and Si-Vi functionalities only in terminal positions, i.e. only in the form of -SiMe₂H and -SiMe₂Vi, in molecules with two or more functional sites. Functionalities of these types generally do not exhibit any steric hindrance difficulties when subjected to hydrosilylation reactions. Consequently, matrices produced with these four ingredient types as defined above generally contain minimal unreacted functionality including both -SiMe₂H and -SiMe₂Vi and minimal amounts of unreacted extractables in the final product. As a further

(23) 102-179919 (P2002-179919A)

consequence of the absence of residual functionality and extractables, these elastomeric-like matrices exhibit minimal gloss on application to the skin. Furthermore, following volatilization or absorption of the silicone carrier in the resulting gel system, an elastomeric-like silicone film is formed which is water repellent and is almost invisible following the application of the resulting composition having it incorporated therein.

The hydrosilylation reaction is carried out under conventional hydrosilylation conditions known to those skilled in the art, such as on the order of less than about 85°C, preferably at a temperature of from about 25°C to about 80°C and in the presence of from about 2 to about 200 ppm, preferably from about 10 ppm to about 50 ppm, of any of the known hydrosilylation catalysts based on the amount of functional components present. Exemplary catalysts are platinum based hydrosilylation catalyst such as chloroplatinic acid or those described in, *Inter alia*, Lamoreaux, United States Patent No. 3,220,972; Karstedt, United States Patent Nos. 3,715,334; 3,775,452 and 3,814,730; Ashby, United States Patent No. 4,421,903; and 4,288,345. Especially preferred are those catalysts commonly referred to as Karstedt's catalysts and Ashby's catalysts. Of course, use of other suitable hydrosilylation catalysts known to persons skilled in the art, such as those including precious metals, such as ruthenium, rhodium, palladium, osmium, and iridium, and complexes of these metals are also contemplated as being within the scope of the present invention.

The method of producing the silicone gels of the present invention proceeds by hydrosilylating the four functional oligomeric silicones with hydrosilylating catalyst in the presence of the low molecular weight volatile organosilicone fluid. Preferably the total amount of hydrosilylation reactants ranges from about 10 to about 20 parts by weight and the total amount of volatile fluid ranges from about 80 to about 90 percent by weight based on the combined weight of hydrosilylation reactants and volatile fluid. The thus formed composition is then preferably sheared in the presence of up to about 100 parts by weight of the same or different volatile organosilicone fluid to form the gels of the present invention.

The compositions of the invention have many advantages over the compositions known and/or are currently in related uses in the cosmetics industry. The gels can also be formulated into cosmetic formulation with the addition of other cosmetic ingredients known to those skilled in the art including non-volatile silicone-aliphatic hydrocarbon

(24) 002-179919 (P2002-179919A)

hybrid fluids, and organic materials such as long chain, aliphatic hydrocarbons and esters. Active Ingredients such as stearoxytrimethylsilane, can be readily formulated into these mixtures. Other cosmetic additives including perfumes, anti-wrinkle agents, anti-perspirant, a humectant, an insect repellent, an odorant, a deodorant, an emollient, an antiseptic, a sunscreen, a cleansing agent, a suitable pharmaceutical, a pigment, a biocide and mixtures of any of the foregoing may also be added.

EXAMPLES

The following Examples are presented solely to illustrate the present invention. They are not, however, to be construed to limit in any manner whatsoever, the scope of the invention or the claims thereto.

EXAMPLE 1

A silicone gel was prepared by reacting 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst in 75 g (0.019 mole) of linear $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_5\text{SiMe}_2\text{Vi}$, 65 g (0.074 mole) of linear $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$, 55 g (0.039 mole) of $(\text{Me}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ resin, and 5.0 g (0.0152 mole) of $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ as the crosslinking agent, at room temperature in 800 g of decamethylcyclopentasiloxane. After 24 hours, a hard gel was formed. Five hundred grains of this gel was then placed in a Waring blender with an additional 500 g of decamethylcyclopentasiloxane. This mixture was sheared by blending at the maximum RPM for about 10 minutes. The resulting liquid was transferred to a glass jar and covered with a tight-fitting screw top cover. After remaining thus at room temperature for about 20 hours, the resulting gel was translucent and had a consistency similar to petrolatum.

EXAMPLE 2

A silicone gel was prepared using 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst in 75 g (0.019 mole) of linear $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_5\text{SiMe}_2\text{Vi}$, 65 g (0.074 mole) of linear $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$, 55 g (0.039 mole) of $(\text{Me}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ resin, and 5.0 g (0.0152 mole) of $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ as the crosslinking agent at room temperature in 800 g of 3-n-hexylheptamethyltrisiloxane (SilCare™ 41M10 Hexyl Methicone). After 24 hours, a hard gel was formed. Five hundred grams of this gel was then placed in a Waring blender with an additional 500 g of 3-n-

(25) 02-179919 (P2002-179919A)

hexylheptamethyltrisiloxane. This mixture was sheared by blending at the maximum RPM for about 10 minutes. The resulting liquid was transferred to a glass jar and covered with a tight-fitting screw top cover. After remaining thus at room temperature for about 20 hours, the resulting gel was transparent and had a consistency similar to petrolatum.

EXAMPLE 3

A silicone gel was prepared using 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst in 75 g (0.019 mole) of linear $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_8\text{SiMe}_2\text{Vi}$, 65 g (0.074 mole) of linear $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{10}\text{SiMe}_2\text{H}$, 55 g (0.039 mole) of $(\text{Me}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ resin and 5.0 g (0.0152 mole) of $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ as the crosslinking agent at room temperature in 800 g of n-octyltris(trimethylsiloxy)silane (SilCare™ 31M60 Caprylyl Trimethylcone). After 24 hours, a hard gel was formed. Five hundred grams of this gel was then placed in a Waring blender with an additional 500 g of n-octyltris(trimethylsiloxy)silane. An infrared analysis of this mixture confirmed the absence of any absorption at 2100 cm^{-1} , where Si-H is observed. This mixture was sheared by blending at the maximum RPM for about 10 minutes. The resulting liquid was transferred to a glass jar and covered with a tight-fitting screw top cover. After remaining thus at room temperature for about 20 hours, the resulting gel was transparent and had a consistency similar to petrolatum.

EXAMPLE 4

Following the protocol of ASTM method E1490-92 entitled "Sensory Evaluation of Materials and Products", a Sensory Panel composed of 10 trained volunteers determined the sensory profile of the gels prepared as described in Examples 1 and 2 above and petrolatum. The averaged values for each sensory parameter obtained by the sensory panel are shown and plotted on FIG. 1 described in detail herein above. Of particular note are the lower residue and lower waxiness of the gel film deposited on the skin using 3-n-hexylheptamethyltrisiloxane (SilCare™ 41M10 Hexyl Methylcone) as the carrier versus using decamethylcyclopentasiloxane (D5) as the carrier. There are striking differences between the various sensory characteristics of petrolatum and these silicone gels. These were more or less to be expected from the prior art known. However, and of particular note and importance, are the significantly lower gloss and higher spreadability and smoothness values for these silicone gels versus petrolatum.

(26) 102-179919 (P2002-179919A)

COMPARATIVE EXAMPLE 1

A silicone gel was prepared using 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst in 11.0 g (0.00165 mole) of linear $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{88}\text{SiMe}_2\text{Vi}$, 22.0 g (0.0156 mole) of $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ resin, and 7.0 g (0.0212 mole) of $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ crosslinker at room temperature in 360 g of decamethylcyclopentasiloxane. After 24 hours, a soft gel had formed. When this gel was spread on the skin, the film formed was slimy.

COMPARATIVE EXAMPLE 2

A silicone gel was prepared using 10 ppm of Karstedt's platinum catalyst in 16.5 g (0.0025 mole) of linear $\text{ViMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_{88}\text{SiMe}_2\text{Vi}$, 16.5 g (0.0117 mole) of $(\text{Me}_3\text{SiO}_{1/2})_4(\text{ViMe}_2\text{SiO}_{1/2})_4(\text{SiO}_2)_{12}$ resin, and 7.0 g (0.0152 mole) of $\text{PhSi}(\text{OSiMe}_2\text{H})_3$ crosslinker at room temperature in 360 g of 3-n-hexylheptamethyltrisiloxane (SilCare™ 41M10 Hexyl Methicone). After 24 hours, a soft gel had formed. When this gel was spread on the skin, the film formed was shiny and oily.

Note: $\text{HMe}_2\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_x\text{SiMe}_2\text{H}$ is absent from both of the above comparative examples but the stoichiometry was kept at $\text{Vi/i}=1.0$

Many variations of the present invention will suggest themselves to those of ordinary skill in the art in light of the above-detailed description. For example, gels may be formulated from a mixture of any combination of volatile silicones, volatile alkylsilicone hybrid materials or both and may include volatile and non-volatile organic substances. All such obvious variations are within the full intended scope of the appended claims.

The above-mentioned patents and test methods are hereby incorporated by reference in their entirety.

4. Brief Description of the Drawings

The drawing FIGURE 1 is a comparison study on a scale basis of petrolatum with silicone gel in D5 and with silicone gel in 41M10.

Various so-called sensory characteristics are compared for the well-known product, petrolatum, and two products of the present invention in known carriers (D5 and 41M10).